

VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM  
GEBIET DES PATENTWESENS

PCT

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT  
(Artikel 36 und Regel 70 PCT)

REG'D 08 JUN 2004

WIPO

PCT

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts 0000053209	<b>WEITERES VORGEHEN</b> siehe Mitteilung über die Übersendung des internationalen vorläufigen Prüfungsberichts (Formblatt PCT/PEA/416)	
Internationales Aktenzeichen PCT/EP 03/00488	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 20.01.2003	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) 24.01.2002
Internationale Patentklassifikation (IPK) oder nationale Klassifikation und IPK C07C1/22, C07C1/22		
Anmelder BASF AKTIENGESELLSCHAFT et al.		

1. Dieser internationale vorläufige Prüfungsbericht wurde von der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt.

2. Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 5 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.

Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; dabei handelt es sich um Blätter mit Beschreibungen, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit vor dieser Behörde vorgenommenen Berichtigungen (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsrichtlinien zum PCT).

Diese Anlagen umfassen insgesamt 2 Blätter.

3. Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:

- I  Grundlage des Bescheids
- II  Priorität
- III  Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erforderliche Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit
- IV  Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung
- V  Begründete Feststellung nach Regel 66.2 a)ii) hinsichtlich der Neuheit, der erforderlichen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung
- VI  Bestimmte angeführte Unterlagen
- VII  Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung
- VIII  Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Datum der Einreichung des Antrags 06.06.2003	Datum der Fertigstellung dieses Berichts 08.06.2004
Name und Postanschrift der mit der internationalen Prüfung beauftragten Behörde Europäisches Patentamt - P.B. 5818 Patentlaan 2 NL-2280 HV Rijswijk - Pays Bas Tel. +31 70 340 - 2040 Tx: 31 651 epo nl Fax: +31 70 340 - 3016	Bevollmächtigter Bediensteter O'Sullivan, P Tel. +31 70 340-4511



**I. Grundlage des Berichts**

1. Hinsichtlich der **Bestandteile** der internationalen Anmeldung (*Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigefügt, weil sie keine Änderungen enthalten (Regeln 70.16 und 70.17)*):

**Beschreibung, Seiten**

1-10 in der ursprünglich eingereichten Fassung

**Ansprüche, Nr.**

2-10 in der ursprünglich eingereichten Fassung  
1 eingegangen am 06.05.2004 mit Schreiben vom 04.05.2004

2. Hinsichtlich der **Sprache**: Alle vorstehend genannten Bestandteile standen der Behörde in der Sprache, in der die internationale Anmeldung eingereicht worden ist, zur Verfügung oder wurden in dieser eingereicht, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

Die Bestandteile standen der Behörde in der Sprache: zur Verfügung bzw. wurden in dieser Sprache eingereicht; dabei handelt es sich um:

- die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen Recherche eingereicht worden ist (nach Regel 23.1(b)).
- die Veröffentlichungssprache der internationalen Anmeldung (nach Regel 48.3(b)).
- die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen vorläufigen Prüfung eingereicht worden ist (nach Regel 55.2 und/oder 55.3).

3. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale vorläufige Prüfung auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das:

- in der internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist.
- zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.
- bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.
- Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfassten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

4. Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:

- Beschreibung, Seiten:
- Ansprüche, Nr.:
- Zeichnungen, Blatt:

**INTERNATIONALER VORLÄUFIGER  
PRÜFUNGSBERICHT**

Internationales Aktenzeichen PCT/EP 03/00488

5.  Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der Änderungen erstellt worden, da diese aus den angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2(c)).

*(Auf Ersatzblätter, die solche Änderungen enthalten, ist unter Punkt 1 hinzuweisen; sie sind diesem Bericht beizufügen.)*

6. Etwaige zusätzliche Bemerkungen:

**V. Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung**

1. Feststellung Neuheit (N)	Ja: Ansprüche 1-10
	Nein: Ansprüche
Erfinderische Tätigkeit (IS)	Ja: Ansprüche
	Nein: Ansprüche 1-10
Gewerbliche Anwendbarkeit (IA)	Ja: Ansprüche: 1-10
	Nein: Ansprüche:

2. Unterlagen und Erklärungen:

**siehe Beiblatt**

**Zu Punkt V**

**Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung**

Es wird auf die folgenden Dokumente verwiesen:

D1: XP-2235170 (Beilstein online Reaction ID 601785)  
D2: XP-2235169

Das Dokument D3 wird im internationalen Recherchenbericht nicht angegeben, wird aber in D1 zitiert. Eine Kopie des Dokuments liegt bei:

D3: Papa, Schwenk & Whitman, J. Org. Chem, 7, 1942, pp 587-589  
D4: Merz und Rauschel, Synthesis, Band 8, 1993, pp 797-802 (in der Anmeldung zitiert)

**1. Klarheit (Art 6 PCT)**

Der unabhängige Anspruch 1 wird nicht, wie in Artikel 6 PCT vorgeschrieben, durch die Beschreibung gestützt, da sein Umfang über den durch die Beschreibung gerechtfertigten Umfang hinausgeht. Die Gründe dafür sind die folgenden: Bezuglich der Verbindungen in denen X für  $\text{CH}[\text{OC}_1\text{-C}_6\text{-Alkyl}]_2$ ,  $\text{CH}_2\text{OH}$  oder  $\text{CH}_2\text{OC}_1\text{-C}_6\text{-Alkyl}$  steht, enthalten die Anmeldungsunterlagen keine ausreichenden Angaben aufgrund derer glaubhaft sein könnte, dass die Aufgabe (Seite 2, Zeile 23-31) tatsächlich gelöst worden ist. Die Beschreibung enthält nur Beispiele, die die Hydrierung von 3,4,5-Trimethoxybenzaldehyd betreffen.

**1. Neuheit (Art 33(2) PCT)**

D1 ("Reaction Details 22 of 23") und D3 (in D1 zitiert) offenbaren die Herstellung von Methylbenzen durch Umsetzung von Benzaldehyd unter Verwendung von einer Ni-Al Legierung (Raney). Das Lösungsmittel ist 10% NaOH in Wasser (D4, Seite 588, "Experimental"). D1 offenbart ebenfalls ("Reaction Details 14 of 23") die Herstellung von Methylbenzen durch Hydrierung von Benzaldehyd unter Verwendung von Kupfer. D4 offenbart (Seite 799) die Hydrierung von 3,4,5-Trimethoxybenzaldehyde zu 3,4,5-Trimethoxytoluol in Gegenwart von 10% Pd auf Aktivkohle. Cobalt-, Nickel- oder Kupfer Katalysatoren wurden nicht in D4 erwähnt. Der Gegenstand der Ansprüche 1-10 erfüllt somit das Erfordernis von Art 33(2) PCT.

## 2. Erfinderische Tätigkeit (Art 33(3) PCT)

Der Anmeldung ist folgende, der Erfindung zugrunde liegende Aufgabe zu entnehmen (siehe Beschreibung, Seite 2, Zeile 23-31): es soll ein verbessertes Verfahren zur Herstellung von substituierten Toluolverbindungen, bereitgestellt werden.

D4 ist als nächster Stand der Technik zu betrachten. Der Unterschied zwischen D4 und der vorliegenden Anmeldung liegt in den Zusammensetzungen des Katalysators der Beispiele. Im Vergleich mit D4 (Seite 799, "5-Methyl-1,2,3-benzenetriol"; 97% Ausbeute), führen die Katalysatoren der vorliegenden Anmeldung zu einer etwas niedrigeren Ausbeute. Die Verwendung von der Katalysatoren der vorliegenden Anmeldung vermeidet jedoch den Einsatz teurer edelmetall- und chromhaltiger Katalysatoren sowie korrosive Lösungsmittel.

Nichtdestotrotz, wird der unabhängige Anspruch 1 nicht, wie in Artikel 6 PCT vorgeschrieben, durch die Beschreibung gestützt, da sein Umfang über den durch die Beschreibung gerechtfertigten Umfang hinausgeht. Die Gründe dafür sind die folgenden: Bezuglich der Verbindungen in denen X für  $\text{CH}[\text{OC}_1\text{-C}_6\text{-Alkyl}]_2$ ,  $\text{CH}_2\text{OH}$  oder  $\text{CH}_2\text{OC}_1\text{-C}_6\text{-Alkyl}$  steht, und in denen  $\text{R}^1$ ,  $\text{R}^2$  und  $\text{R}^3$  für OH stehen, enthalten die Anmeldungsunterlagen keiner ausreichenden Angaben aufgrund derer glaubhaft sein könnte, dass die Aufgabe (Seite 2, Zeile 23-31) für diesen Verbindungen tatsächlich gelöst worden ist.

Ansprüche 1-10 können daher nicht als erfinderisch angesehen werden (wichtig: siehe Punkt 3, unten).

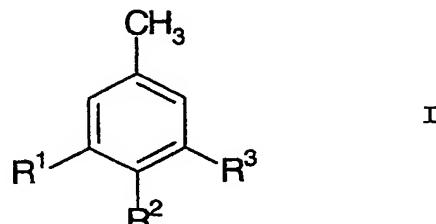
## 3. Verschiedenes

Im Vergleich zu D4, und wie die Beispiele 1-4 der vorliegenden Anmeldung demonstrieren, lassen sich 3,4,5-Trialkoxy-toluole unter Nickel- oder Kupferkatalyse ohne Verwendung teurer edelmetall- und chromhaltiger Katalysatoren sowie korrosiver Lösungsmittel herstellen, ausgehend von 3,4,5-Trialkoxybenzaldehyden. Ansprüche 1-10 (insofern X = CHO und  $\text{R}^1$ ,  $\text{R}^2$ ,  $\text{R}^3$  =  $\text{C}_1\text{-C}_6\text{-alkoxy}$ ) können damit als erfinderisch angesehen werden.

## Patentansprüche

## 1. Verfahren zur Herstellung von Toluolderivaten der Formel I,

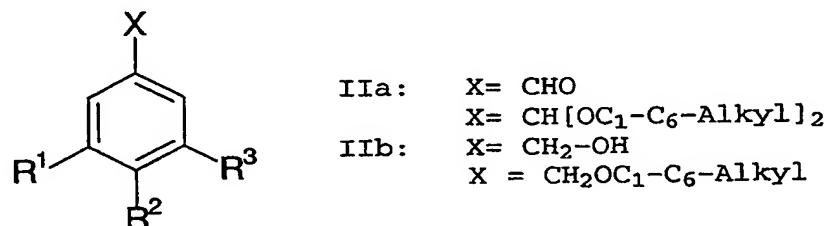
5



10

in der R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup> und R<sup>3</sup> unabhängig voneinander Hydroxyl oder C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkoxy bedeuten, durch Hydrierung von Benzaldehyden und/oder Benzylalkoholen der Formel II,

15



20

mit Wasserstoff in Gegenwart eines Katalysators, dadurch gekennzeichnet, dass sich der Katalysator wie folgt zusammensetzt:

25

- (a) mindestens ein Metall und/oder mindestens ein Oxid, Hydroxid oder Salz eines Metalls ausgewählt aus der Gruppe bestehend aus Cobalt, Nickel und Kupfer;
- 30 (b) 0 bis 50 Gew.-% eines oder mehrerer Metalle und/oder eines oder mehrerer Oxide, Hydroxide oder Salze eines Metalls ausgewählt aus der Gruppe bestehend aus Platin, Rhodium, Eisen, Silber, Molybdän, Wolfram, Mangan, Rhenium, Zink, Cadmium, Blei, Aluminium, Zirkon, Zinn, Phosphor, Silicium, Arsen, Antimon, Bismut, Titan und Selten-  
35 erdmetallen, sowie
- (c) 0 bis 5 Gew.-% eines Alkali- oder Erdalkalioxids, -hydroxids oder -salzes,

40

wobei die Summe der Komponenten (a) bis (c), sofern nicht zusätzlich ein Träger verwendet wird, 100 Gew.-% beträgt.

45

- 2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass die Komponente (a) 40 bis 99 Gew.-% der Summe der Komponenten (a) bis (c) ausmacht.

## 12

3. Verfahren nach den Ansprüchen 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass die Komponente (b) 1 bis 40 Gew.-% der Summe der Komponenten (a) bis (c) ausmacht.

5 4. Verfahren nach den Ansprüchen 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, dass die Komponente (c) 0,05 bis 5 Gew.-% der Summe der Komponenten (a) bis (c) ausmacht.

5. Verfahren nach Anspruch 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, dass  
10 die Hydrierung in einem Lösungsmittel durchgeführt wird.

6. Verfahren nach Anspruch 5, dadurch gekennzeichnet, dass als Lösungsmittel ein Ether, ein Alkylbenzol, Wasser oder Alkohol oder ein Gemisch dieser Lösungsmittel eingesetzt wird.

15 7. Verfahren nach den Ansprüchen 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, dass die Hydrierung in der Gasphase durchgeführt wird.

8. Verfahren nach den Ansprüchen 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet,  
20 dass die Hydrierung in der Schmelze der Verbindung II durchgeführt wird.

9. Verfahren nach den Ansprüchen 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, dass man die Hydrierung bei Drücken von 20 bis 250 bar  
25 und bei Temperaturen von 100 bis 260 °C durchführt.

10. Verfahren nach den Ansprüchen 1 bis 9 zur Herstellung von  
3,4,5-Trimethoxytoluol.

30

35

40

45